FATENT COOPERATION TREATY

	From the INTERNATIONAL BUREAU			
PCT	То:			
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year) 07 July 2000 (07.07.00)	ELENAC GMBH Industriepark Höchst Patentstelle Gebäude E413 D-65926 Frankfurt/Main ALLEMAGNE			
Applicant's or agent's file reference	And the second s			
0775/00009	IMPORTANT NOTIFICATION			
International application No. PCT/EP99/07837	International filing date (day/month/year) 15 October 1999 (15.10.99)			
1. The following indications appeared on record concerning:				
X the applicant X the inventor	the agent the common representative			
Name and Address KÄMMERER, Michael	State of Nationality State of Residence DE DE			
Kastanienweg 38 D-50389 Wesseling Germany	Telephone No.	Telephone No.		
Germany	Facsimile No.			
	. Teleprinter No.			
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that t	the following change has been recorded concerning:			
the person the name X the add				
Name and Address	State of Nationality State of Residence			
KÄMMERER, Michael Karl-Dillinger-Strasse 41	DE DE			
D-67071 Ludwigshafen Germany	Telephone No.			
Sermany	Facsimile No.			
	Teleprinter No.	\neg		
3. Further observations, if necessary:				
4. A copy of this notification has been sent to:				
X the receiving Office	the designated Offices concerned			
the International Searching Authority	X the elected Offices concerned			
X the International Preliminary Examining Authority	other:			
The International Pursous of WIPO	Authorized officer			
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	G. Bähr			
Engelmile No : (41 22) 740 14 25	Tolophono No : (41 22) 338 93 38	l		

MOV 2 2 1999 CT

Date of mailing (day/month/year)

I..TENT COOPERATION TREA.Y

PCT

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING

(PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422)

OF A CHANGE

To:	
ISENBRUCK, Günter Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck Theodor-Heuss-Anlage 12 D-68165 Mannheim ALLEMAGNE	
IMPORTANT NOTIFICATION	
nternational filing date (day/month/year)	
15 October 1999 (15.10.99)	

From the INTERNATIONAL BUREAU

16 November 1999 (16.11.99)			
Applicant's or agent's file reference			
NAE19980591P		IMPORTANT NO	OTIFICATION
International application No.	Internation	onal filing date (day/mont)	n/year)
PCT/EP99/07837		October 1999 (15.10.9	
The following indications appeared on record concerning: the applicant	X the ager	nt the com	mon representative
Name and Address		State of Nationality	State of Residence
ISENBRUCK, Günter			
Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck Theodor-Heuss-Anlage 12		Telephone No.	
D-68165 Mannheim Germany		Facsimile No.	W. C.
		Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that	the following	change has been recorde	d concerning.
the person the name the ad		the nationality	the residence
Name and Address		State of Nationality	State of Residence
	Ī	Telephone No.	
		0621 42271 0	
		Facsimile No.	
		0621 42271 31	
		Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary: The above-mentioned agent has renounced his	appointme	nt.	
4. A copy of this notification has been sent to:			
X the receiving Office	Г	X the designated Office	s concerned
X the International Searching Authority	F	the elected Offices co	
the International Preliminary Examining Authority		other:	ncenteu
The International Bureau of WIPO	Authorized o	officer	

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

G. Bähr

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

		·	

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT	To:		
NOTIFICATION OF ELECTION	Assistant Commissioner for Patents		
(PCT Rule 61.2)	United States Patent and Trademark Office		
	Box PCT Washington, D.C.20231		
Date of mailing (day/month/year)	ETATS-UNIS D'AMERIQUE		
07 June 2000 (07.06.00)	in its capacity as elected Office		
International application No.	Applicant's or agent's file reference		
PCT/EP99/07837	0775/00009		
International filing date (day/month/year) 15 October 1999 (15.10.99)	Priority date (day/month/year) 15 October 1998 (15.10.98)		
Applicant			
DE LANGE, Paulus et al	P. P		
1. The designated Office is hereby notified of its election ma X in the demand filed with the International Prelimina 13 April 2000 in a notice effecting later election filed with the Inte 2. The election X was was not made before the expiration of 19 months from the priority Rule 32.2(b).	ory Examining Authority on:		
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes	Authorized officer		
34, cnemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Kiwa Mpay		
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38		

. .TENT COOPERATION TREATY

DOT	From the INTERNATIONAL BUREAU			
PCT	То:			
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year) 01 February 2001 (01.02.01)	ELENAC GMBH Industriepark Höchst Patentstelle Gebäude E413 D-65926 Frankfurt/Main ALLEMAGNE			
Applicant's or agent's file reference 0775/00009	IMPORTANT NOTIFICATION			
International application No. PCT/EP99/07837	International filing date (day/month/year) 15 October 1999 (15.10.99)			
The following indications appeared on record concerning: The applicant the inventor	the agent the common representative			
Name and Address ELENAC GMBH D-77694 Kehl Germany	State of Nationality DE DE Telephone No. 069 305 6079 Facsimile No. 069 3056 27441 Teleprinter No.			
The International Bureau hereby notifies the applicant that the the person The name the add				
Name and Address BASELL POLYOLEFINE GMBH D-77694 Kehl Germany	State of Nationality DE DE Telephone No. 069 305 6079 Facsimile No. 069 3056 27441 Teleprinter No.			
3. Further observations, if necessary:				
4. A copy of this notification has been sent to: X the receiving Office the International Searching Authority the International Preliminary Examining Authority	the designated Offices concerned X the elected Offices concerned other:			
34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer G. Bähr Telephone No.: (41.22) 338 83 38			

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

	·			
Applicant's or agent's file reference 0775/00009	FOR FURTHER ACTION		ication of Transmittal of International Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No.	on No. International filing date (day/month/year) Priority date (day/month/ye		Priority date (day/month/year)	
PCT/EP99/07837	15 October 1999 (1	5.10.99)	15 October 1998 (15.10.98)	
International Patent Classification (IPC) or n B01J 8/00	ational classification and IPC			
Applicant	BASELL POLYOLEFI	NE GMBH		
Authority and is transmitted to the a 2. This REPORT consists of a total of This report is also accompa been amended and are the b (see Rule 70.16 and Section	8 sheets, include the sheets of the sheets o	6. ling this cover: s of the descripts containing r	tion, claims and/or drawings which have ectifications made before this Authority	
3. This report contains indications rela	ting to the following items:			
I Basis of the report	ţ			
II Priority			id	
III Non-establishmen	t of opinion with regard to nov	elty, inventive	step and industrial applicability	
IV Lack of unity of in	nvention		9 6	
V Reasoned stateme citations and expla	nt under Article 35(2) with reg anations supporting such stater	ard to novelty, nent	inventive step or industrial applicability;	
VI Certain document				
VII Certain defects in	the international application		700	
VIII Certain observations on the international application				
Date of submission of the demand	Date	of completion	of this report	
13 April 2000 (13.04	1.00)	11 D	ecember 2000 (11.12.2000)	
Name and mailing address of the IPEA/EP	Auth	orized officer		
Facsimile No.	Tele	ohone No.		

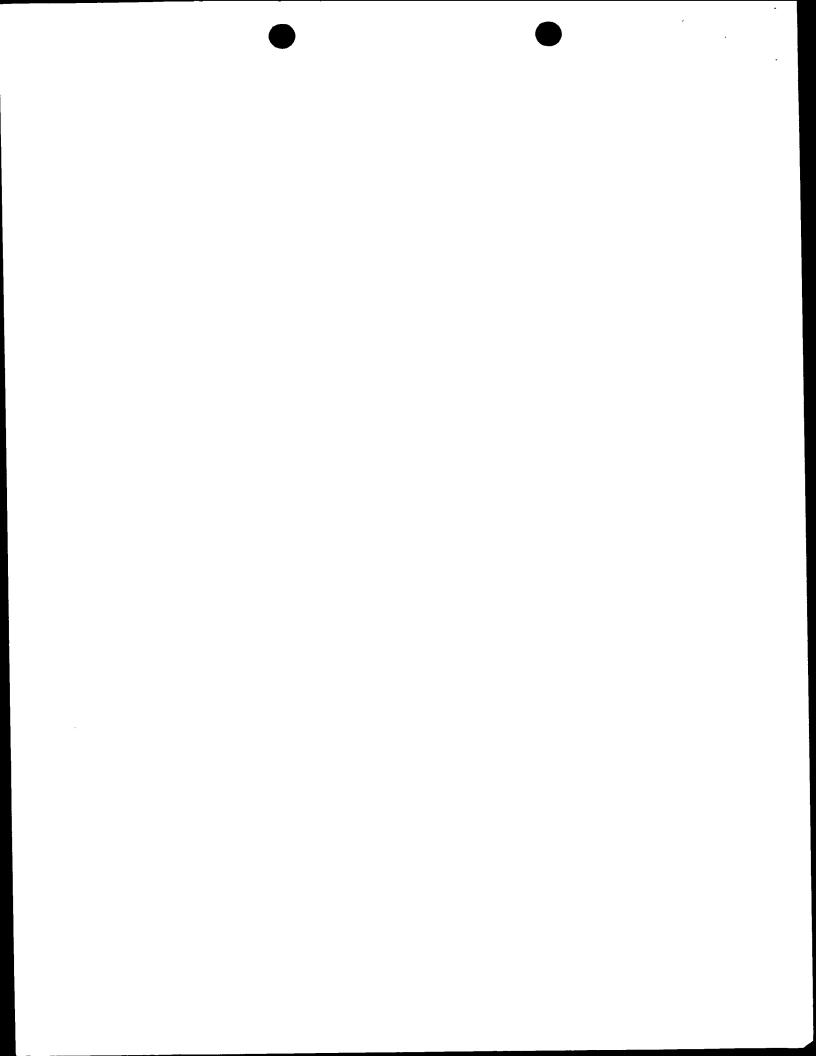
				,	e
	•				J.
₹ij.					

International application No.

ŧ

PCT/EP99/07837

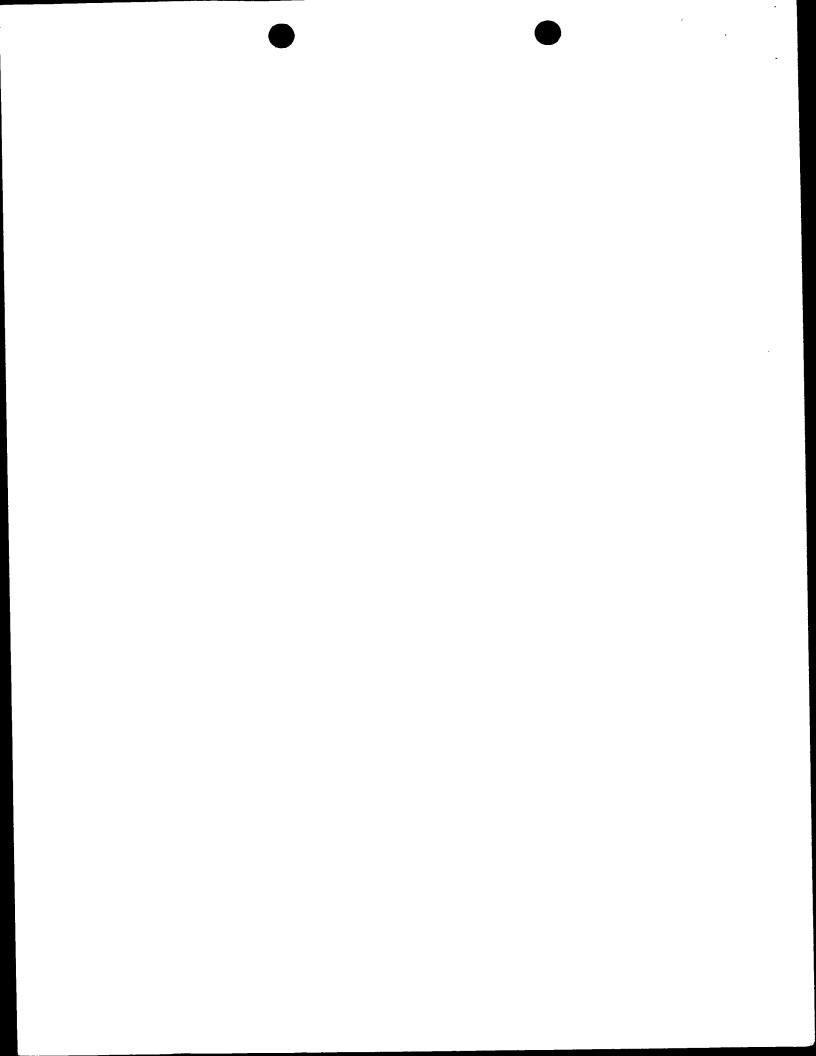
I. Basis of	the report			•	
1. This repunder Art	ort has been drawn of icle 14 are referred to	on the basis of in this report as	(Replacement sheet s "originally filed"	s which have been furnished to and are not annexed to the	o the receiving Office in response to an invitation report since they do not contain amendments.):
	the international	l application as	originally filed.		
\boxtimes	the description,	pages	1-13	_, as originally filed,	
		pages		_, filed with the demand,	
		pages		_, filed with the letter of	,
		pages		_, filed with the letter of	•
\boxtimes	the claims,	Nos		_, as originally filed,	
		Nos		, as amended under Artic	le 19,
		Nos		_, filed with the demand,	
		Nos	1-11	_, filed with the letter of	14 November 2000 (14.11.2000) ,
\boxtimes	the drawings,	sheets/fig	1/2,2/2	_, as originally filed,	
		sheets/fig		_, filed with the demand,	
		sheets/fig		, filed with the letter of	,
		sheets/fig		, filed with the letter of	
2. The amer	dments have resulte	ed in the cancel	llation of:		
	the description,	pages			
	the claims,			•	
	the drawings,				
3. Th	is report has been es go beyond the disclo	stablished as if osure as filed, a	(some of) the ames indicated in the	endments had not been mad Supplemental Box (Rule 7	de, since they have been considered (70.2(c)).
4. Additiona	l observations, if ne	cessary:			



International application No.

PCT/EP99/07837

IV. Lack of unity of invention
1. In response to the invitation to restrict or pay additional fees the applicant has:
restricted the claims.
paid additional fees.
paid additional fees under protest.
neither restricted nor paid additional fees.
2. This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose, according to Rule 68.1, not to invite the applicant to restrict or pay additional fees.
3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is
complied with.
not complied with for the following reasons:
See annex
4. Consequently, the following parts of the international application were the subject of international preliminary examination in establishing this report:
all parts.
the parts relating to claims Nos



Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV. 3

The subject matter of the application lacks unity of invention according to PCT Rule 13.1.

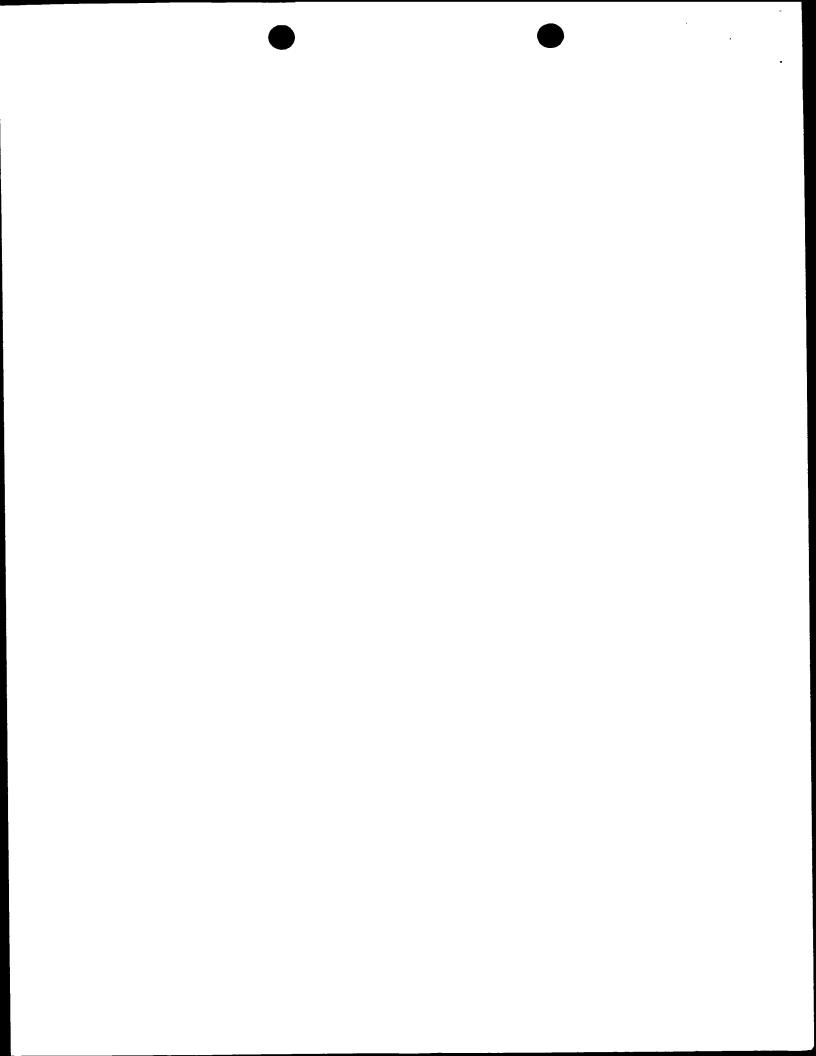
The various invention/groups of inventions are:

- a) a process for treating catalysts and a reactor for implementing this process (Claims 1-10);
- b) polyolefins prepared using catalysts treated according to the process described in Claim 1 (Claim 11).

The catalyst forms the sole concept that could link independent Claims 1, 6 and 11. The novelty and inventive step of this concept cannot at present be discerned, regeneration of catalysts and their use in various catalytic processes being generally known per se. However, neither the application nor the letter of 29 February 2000 have demonstrated why a catalyst treated as per Claim 1 should be novel and involve an inventive step.

The applicant was requested in writing on 13 July 2000 either to inform the authority which invention should be addressed in further examination of this application and correspondingly to restrict the application or to pay an additional examination fee. In his letter of 25 July 2000 the applicant deleted Claims 7 and 13 as filed, which had been objected to owing to lack of unity of invention.

Claim 13 as filed was resubmitted in conjunction with the letter of 14 November 2000 as new Claim 11. With respect to resubmission of this claim, the applicant referred to



Supplemental Box

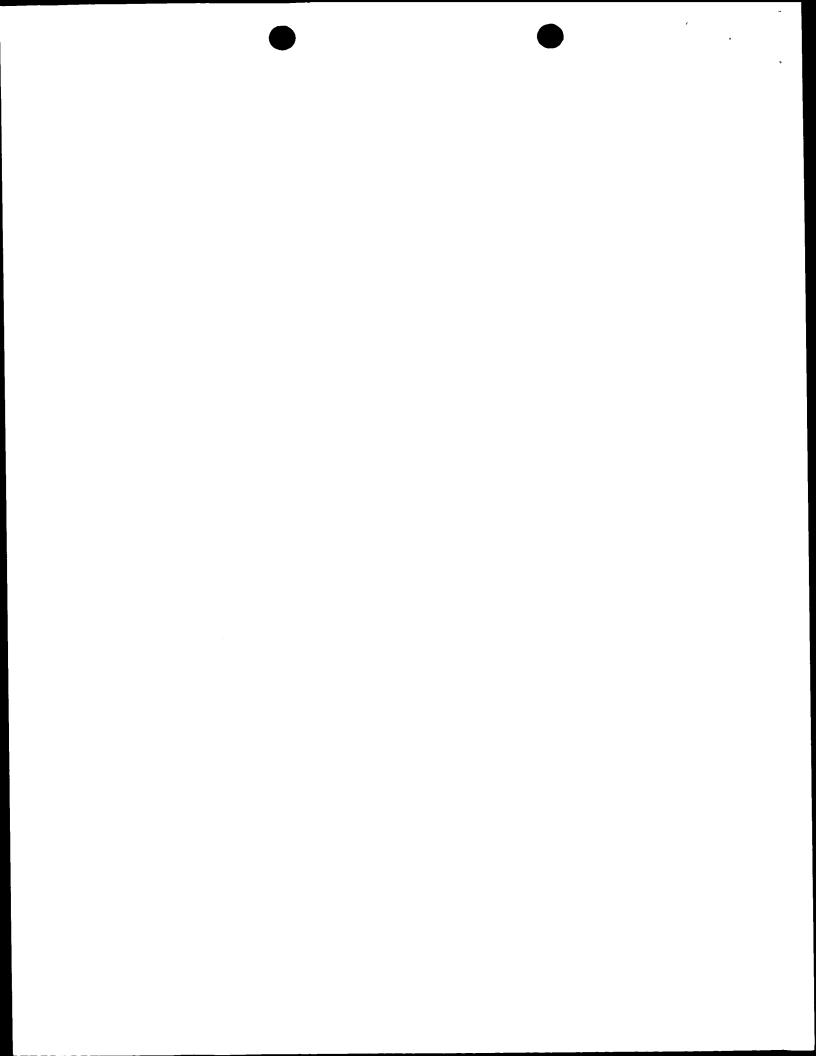
(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV.3

Decision W 16/00 of the Board of Appeal.

The Examining Authority does not need to consider this decision, which pertains exclusively to the reasons put forward by the Searching Authority, in the present case. The Board of Appeal has in no sense established unity of invention. The reasons put forward by the Searching Authority were not challenged in this decision, the objection being upheld because the applicant did not state an opinion on the novelty and inventive step of the catalysts treated according to the process described in Claim 1.

The Examining Authority will therefore make no comment on the subject matter of Claim 11.



V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1.	Statement			
	Novelty (N)	Claims		YES
		Claims	1-10	NO
	Inventive step (IS)	Claims		YES
		Claims	1-10	NO
	Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
		Claims		NO

2. Citations and explanations

1. This report makes reference to the following documents:

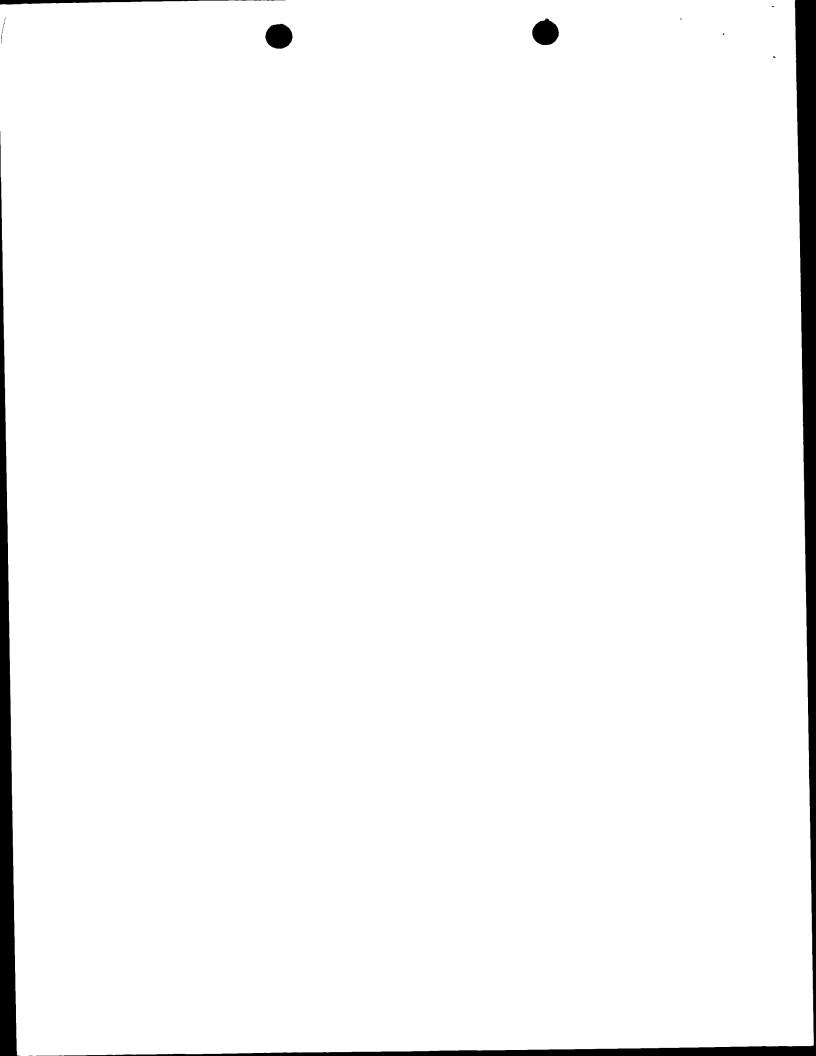
D1: US-A-4 038 038 (BONN DORRANCE P, STRICKLAND JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 26 July 1977 (1977-07-26)

D2: US-A-4 518 750 (GOVONI GABRIELE ET AL.) 21 May 1985 (1985-05-21)

D3: EP-A-0 101 893 (BASF AG) 7 March 1984 (1984-03-07)

D4: US-A-4 229 608 (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21 October 1980 (1980-10-21)

- The subject matter of Claims 1-10 is not novel within the meaning of PCT Article 33(1) and (2).
- 3. The subject matter of Claims 1-10 is not novel in light of D1. Statement of a later use of the treated catalyst is not a technical feature of the process as per Claims 1-5 of the application and therefore does not delimit the claimed subject matter over the prior art. The claim relates to the treatment of pure catalyst carriers.



D1 discloses a reactor as per Claim 6 of the application wherein catalysts as per Claim 1 are regenerated. The reactor floor is conical in form. See Figure 1 and column 1, line 60 - column 5, line 55.

The device comprises two cyclones.

Supplementary gases are introduced (Figure 11: 111 and 112, column 4, line 26 - column 5, line 17).

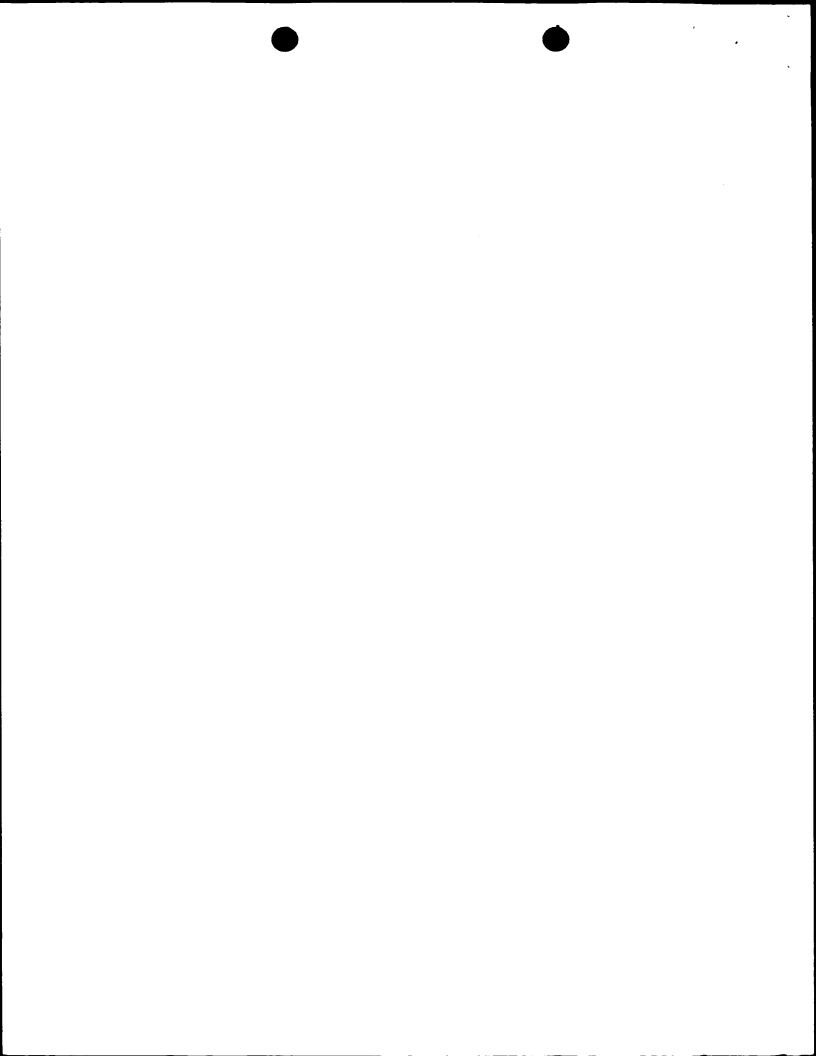
The cone angle is between 30 and 45° (column 3, lines 4-11).

Therefore, the subject matter of Claims 1-10 is not novel.

4. The subject matter of Claims 1, 2 and 6-8 also lacks novelty in light of D2 (Figures 1 and 3). The separating element is designated 14 (see also column 3, lines 9-17, and column 6, line 17).

A cyclone and the separating element in D2 fulfil prima facie the same function. A person skilled in the art would therefore consider incorporation of this cyclone in the reactor described in D2 a routine design step in order to separate gases and particles. The subject matter of Claim 10 therefore fails to involve an inventive step versus D2 (PCT Article 33(1) and (3)).

5. D3 discloses a reactor as per Claims 6-8 and a process as per Claims 1 and 2 (drawing and page 2, line 11 - page 3, line 3, and page 3, lines 16-18 and 29-31). Gases are continuously fed in and



nternational application No. PCT/EP 99/07837

withdrawn (page 5, lines 24-30). The entrained solid particles are separated.

ŧ

Use of a cyclone may also be considered a routine design step in this case. The subject matter of Claim 10 fails to involve an inventive step *versus* D3 (PCT Article 33(1) and (3)).

		•	•	

VIII. Certain observations on the international application

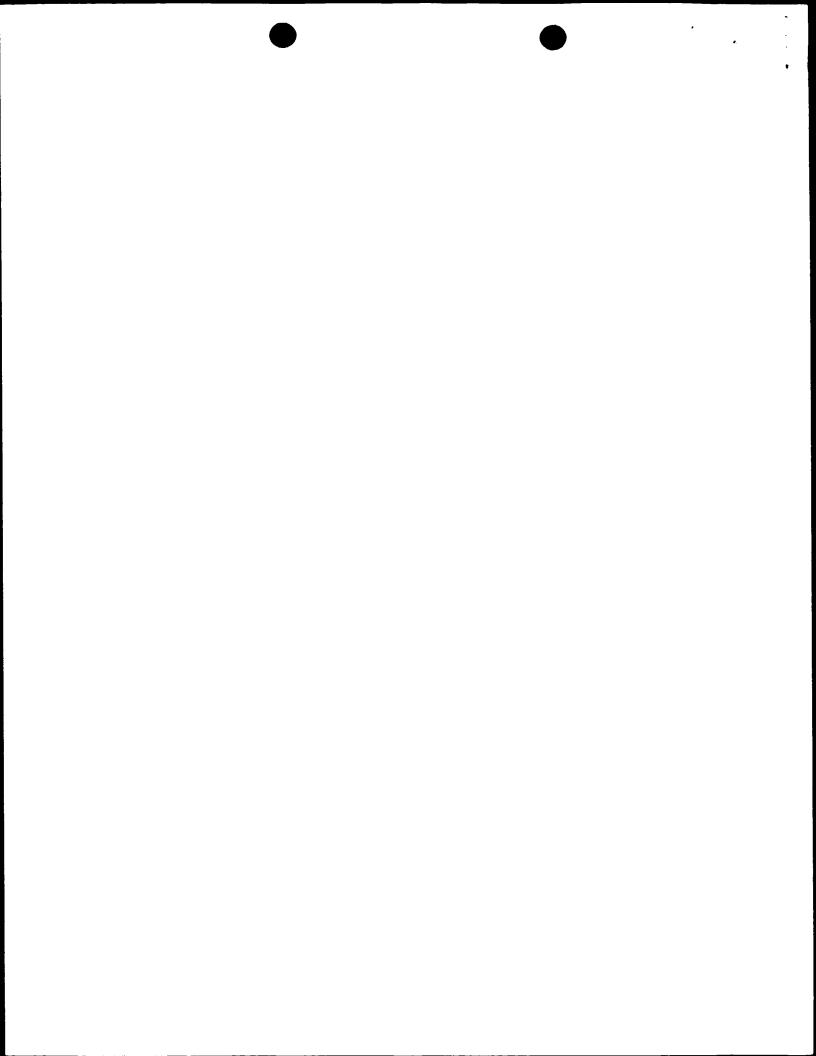
The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. The term "treatment" used in Claim 1 is vague and unclear and leaves the reader in doubt as to the significance of the relevant technical feature. Consequently, the definition of the subject matter of this claim lacks clarity and clear delimitation over the prior art is not possible (PCT Article 6).

In his letter of 14 November 2000 the applicant indicated several differences in discussing inventive step. These could not be considered, since they have not been incorporated in Claim 1.

2. Statement of a later use of the treated catalyst is not a technical feature of the process as per Claims 1-5 of the application. The intended restrictions therefore fail to emerge clearly from the claim, contrary to the requirements of PCT Article 6.

The definition of the catalysts (page 9, line 23 - page 10, line 2) is too general to permit delimitation over the prior art. The indicated carrier materials may also be used for cracking catalysts.



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 1 3 DEC 2000

WIPO

PCT

T/

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeid	chen d	es Anmelders oder Anwalts			·	16
0775/00			WEITERES VORGEHEI	N siehe Mitteil Vorläufigen	ilung über die Übersendung des int Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IF	lemationalen PEA/416)
1		Aktenzeichen	Internationales Anmeldedatum	(Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag))
PCT/EF	P99/0	7837	15/10/1999		15/10/1998	
Anmelder ELENA 1. Dies Beh 2. Dies	C GM er inte er BE Außer und/od Behör	IBH et al. ernationale vorläufige Prüferstellt und wird dem Anmer RICHT umfaßt insgesamt rdem liegen dem Bericht A	8 Blätter einschließlich diese NLAGEN bei; dabei handelt ndert wurden und diesem Bechtigungen (siehe Regel 70.1	es Deckblatts. es sich um Blätt	nale vorläufigen Prüfung beau ter mit Beschreibungen, Anspr iegen, und/oder Blätter mit vor 607 der Verwaltungsrichtlinier	rüchen
i	×	icht enthält Angaben zu fo	lgenden Punkten:			
11 111		Priorität				
IV	⊠	Mangelnde Einheitlichke	iutachtens über Neuheit, erfii	nderische Tätigk	keit und gewerbliche Anwendb	arkeit
v	×	Begründete Feststellung		h der Neuheit, c	der erfinderische Tätigkeit und	der
VI		Bestimmte angeführte U	nterlagen	9-11-01-01-01	ig dieser i estatellarig	
VII		Bestimmte Mängel der in	ternationalen Anmeldung			
VIII	×	Bestimmte Bemerkunger	n zur internationalen Anmeldi	ung		
Datum der I	Einreic	hung des Antrags	Datum	n der Fertigstellung	dieses Berichts	
13/04/200	00		11.12.	2000		
Name und F Prüfung bea	uftrag	schrift der mit der internationa ten Behörde:	len vorläufigen Bevollr	mächtigter Bediens	steter /s	SOONES MATERILAND
<u>)</u>))	D-802 Tel. +	päisches Patentamt 298 München -49 89 2399 - 0 Tx: 523656 e +49 89 2399 - 4465	pmu d Goss	elin, D	GA VES BERVE,	
	rax:	+45 09 2399 - 4465	i		/4	ا لاعد عد

Tel. Nr. +49 89 2399 8400

			•
			-

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07837

1	 Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.): Beschreibung, Seiten: 						
1-13 ursprüngliche Fassung							
	Pa	itentansprüche, Nr	.:				
	1-	11	eingegangen am	15/11/2000	mit Schreiben vom	14/11/2000	
	Ze	ichnungen, Blätter	:			-	
	1/2	2,2/2	ursprüngliche Fassung				
2.	die	internationale Anm	he: Alle vorstehend genannte eldung eingereicht worden ist chts anderes angegeben ist.	n Bestandteile s t, zur Verfügung	tanden der Behörde in oder wurden in diese	n der Sprache, in der r eingereicht, sofern	
	Die dat	e Bestandteile stand bei handelt es sich u	en Behörde in der Sprache: , ım	zur Verfügung b	ozw. wurden in dieser	Sprache eingereicht;	
		die Sprache der Ü Regel 23.1(b)).	bersetzung, die für die Zweck	ke der internation	nalen Recherche eing	ereicht worden ist (nach	
		die Veröffentlichur	ngssprache der internationale	n Anmeldung (n	ach Regel 48.3(b)).		
		die Sprache der Ü ist (nach Regel 55	bersetzung, die für die Zweck .2 und/oder 55.3).	ce der internatior	nalen vorläufigen Prüf	ung eingereicht worden	
3.	Hin inte	sichtlich der in der i rnationale vorläufig	nternationalen Anmeldung off e Prüfung auf der Grundlage	enbarten Nucle des Sequenzpro	otid- und/oder Amine otokolls durchgeführt v	osäuresequenz ist die worden, das:	
		in der international	en Anmeldung in schriftlicher	Form enthalten	ist.		
			internationalen Anmeldung i			worden ist.	
			achträglich in schriftlicher For				
			achträglich in computerlesbar				
		Die Erklärung, das	s das nachträglich eingereich It der internationalen Anmeld	ite schriftliche Se	equenzprotokoll nicht	über den wurde vorgelegt.	
		Die Erklärung, das	s die in computerlesbarer For entsprechen, wurde vorgelegt	m erfassten Info			
4.	Auf	grund der Änderung	en sind folgende Unterlagen	fortgefallen:			

		-
		-

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07837

		Beschreibung, Ansprüche, Zeichnungen,	Seiten: Nr.: Blatt:
5.		angegebenen Gründ	ne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den en nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich ng hinausgehen (Regel 70.2(c)).
		(Auf Ersatzblätter, die beizufügen).	e solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen;sie sind diesem Bericht
6.	Etw	aige zusätzliche Bemo	erkungen:
IV	. Maı	ngelnde Einheitlichke	eit der Erfindung
1.	Auf Ann	die Aufforderung zur I nelder:	Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung zusätzlicher Gebühren hat der
		die Ansprüche einges	schränkt.
		zusätzliche Gebührer	n entrichtet.
		zusätzliche Gebührer	n unter Widerspruch entrichtet.
	\boxtimes	weder die Ansprüche	eingeschränkt noch zusätzliche Gebühren entrichtet.
2.		Die Behörde hat festg gemäß Regel 68.1 be zusätzlicher Gebühre	gestellt, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nicht erfüllt ist, und hat eschlossen, den Anmelder nicht zur Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung n aufzufordern.
3.	Die i und	Behörde ist der Auffas 13.3	sung, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nach den Regeln 13.1, 13.2
		erfüllt ist	
		aus folgenden Gründe siehe Beiblatt	en nicht erfüllt ist:
4.	Dahe inter	er wurde zur Erstellun nationalen Anmeldung	g dieses Berichts eine internationale vorläufige Prüfung für folgende Teile der g durchgeführt:
		alle Teile.	
	\boxtimes	die Teile, die sich auf	die Ansprüche Nr. 1-10 beziehen.

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

			-

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07837

1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche 1-10

1-10

Erfinderische Tätigkeit (ET)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche 1-10

Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken: siehe Beiblatt

			•
			÷

Zu Punkt IV

Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung

Der Gegenstand der Anmeldung ist nicht einheitlich gemäß Regel 13.1 PCT.

Die verschiedenen Erfindungen/Gruppen von Erfindungen sind:

- a) ein Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren und ein Reaktor zur Durchführung dieses Verfahren (Ansprüche 1-10).
- b) Polyolefine hergestellt mittels Katalysatoren, die gemäß dem Verfahren des Anspruchs 1 behandelten sind (Anspruch 11).

Der Katalysator bildet die einzige Idee, die die unabhängigen Ansprüche 1, 6 und 11 miteinander verbinden könnte. Die Neuheit und die erfinderische Tätigkeit dieser Idee ist zur Zeit nicht erkennbar. Das Regenerieren von Katalysatoren und deren Verwendung in verschiedenen katalytischen Verfahren ist als solche allgemein bekannt. Es wurde aber in der Anmeldung oder in Schreiben von 29.02.2000 nicht nachgewiesen, daß ein gemäß Anspruch 1 behandelter Katalysator neu und erfinderisch sein sollte.

Der Anmelder wurde mit Bescheid vom 13.07.200 aufgefordert entweder mitzuteilen, welche Erfindung dem weiteren Verfahren dieser Anmeldung zugrunde gelegt werden sollte, und die Anmeldung entsprechend zu beschränken, oder eine zusätzliche Prüfungsgebühr zu zahlen. Mit Schreiben vom 25.07.2000 hat der Anmelder die ursprünglich eingereichten und als nicht einheitlich beanstandeten Patentansprüche 7 und 13 herausgestrichen.

Mit Schreiben vom 14.11.2000 wurde der ursprüngliche Anspruch 13 als neuer Anspruch 11 wieder hinzugefügt. Der Anmelder hat sich für die Wiedereinführung dieses Anspruchs auf die Entscheidung W 16/00 der Beschwerdekammer berufen.

Die Prüfungsbehörde braucht in diesem Fall diese Entscheidung nicht zu berücksichtigen. Die Entscheidung betrifft ausschließlich die von der Recherchenbehörde vorgebrachten Begründung. Die Beschwerdekammer hat keinesfalls die Einheitlichkeit festgestellt. Die von der Prüfungsbehörde vorgebrachten

		-

Begründung wurde in dieser Entscheidung nicht angefochten. Der Einwand wird aufrechterhalten, weil der Anmelder zur Neuheit und erfinderischer Tätigkeit der Katalysatoren, die gemäß dem Verfahren des Anspruchs 1 behandelten sind, nicht Stellung genommen hat.

Die Prüfungsbehörde wird deshalb zum Gegenstand des Anspruchs 11 nicht Stellung nehmen.

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(II) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- 1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:
 - D1: US-A-4 038 038 (BONN DORRANCE P,STRICKLAND JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 26. Juli 1977 (1977-07-26)
 - D2: US-A-4 518 750 (GOVONI GABRIELE ET AL) 21. Mai 1985 (1985-05-21)
 - D3: EP-A-0 101 893 (BASF AG) 7. März 1984 (1984-03-07)
 - D4: US-A-4 229 608 (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21. Oktober 1980 (1980-10-21)
- Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 10 ist nicht neu im Sinne des Artikel 33(1) und
 (2) EPÜ.
- 3. Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 10 ist nicht neu im Hinblick auf D1. Die Angabe einer späteren Verwendung des behandelten Katalysators ist kein technisches Merkmal des Verfahrens gemäß Ansprüchen 1 bis 5 der Anmeldung und bittet daher keine Einschränkung gegenüber den Stand der Technik. Der Anspruch bezieht sich auch auf die Behandlung der reinen Katalysatorträger.

D1 offenbart einen Reaktor gemäß Anspruch 6 der Anmeldung. In diesem Reaktor

			•
•			

werden Katalysator gemäß Anspruch 1 regeneriert. Der Reaktorboden ist konisch ausgebildet. Siehe Figur 1 und Spalte 1, Zeile 60 bis Spalte 5, Zeile 55.

Die Vorrichtung enthält zwei Zyklonen.

Zusätzliche Gase werden eingebracht (Figur 1: 111 und 112, Spalte 4, Zeile 26 bis Spalte 5, Zeile 17).

Der Konuswinkel liegt zwischen 30 bis 45° (Spalte 3, Zeilen 4-11).

Damit ist der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 10 nicht neu.

4. Der Gegenstand der Ansprüche 1, 2, 6 bis 8 ist ferner auch nicht neu im Hinblick auf D2 (Figuren 1 und 3). Das Abschiedsorgan ist mit 14 gekennzeichnet (Siehe auch Spalte 3, Zeilen 9-17 und Spalte 6, Zeile 17).

Ein Zyklon und das Abschiedsorgan von D2 erfüllen prima facie die gleiche Funktion. Der Fachmann würde daher die Aufnahme dieses Zyklons in das in D2 beschriebenen Reaktor als eine übliche konstruktive Maßnahme zur Trennung von Gasen und Partikeln. Der Gegenstand des Anspruchs 10 beruht damit auf keiner erfinderischen Tätigkeit gegenüber D2 (Artikel 33(1) und (3) EPÜ).

5. D3 offenbart ein Reaktor gemäß Ansprüchen 6 bis 8 und ein Verfahren gemäß Ansprüchen 1 und 2 (Figur, Seite 2, Zeile 11 bis Seite 3, Zeile 3, Seite 3, Zeilen 16-18, Seite 3, Zeilen 29-31). Die Gase werden kontinuierlich eingespeist und abgezogen (Seite 5, Zeilen 24 bis 30). Die mitgerissenen Feststoffpartikel werden abgeschieden.

Die Anwendung eines Zyklons kann auch in diesem Fall als eine übliche konstruktive Maßnahme betrachtet werden. Der Gegenstand des Anspruchs 10 beruht auf keiner erfinderischen Tätigkeit gegenüber D3 (Artikel 33(1) und (3) EPÜ).

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

1. Die in dem Anspruch 1 benutzte Ausdruck "Behandlung" ist vage und unklar und läßt

				٢
				•

den Leser über die Bedeutung des betreffenden technischen Merkmals im Ungewissen. Dies hat zur Folge, daß die Definition des Gegentands dieses Anspruchs nicht klar ist und daß eine deutliche Abgrenzung gegenüber des Standes der Technik (zum Beispiel D) nicht möglich ist (Artikel 6 PCT).

Mit Schreiben vom 14.11.2000 hat der Anmelder bei der Diskussion der erfinderischen Tätigkeit einige Unterschiede angegeben, die nicht Berücksicht werden könnten, da sie nicht im Anspruch 1 aufgenommen wurden.

2. Die Angabe einer späteren Verwendung der behandelten Katalysatoren ist kein technisches Merkmal des Verfahrens gemäß Ansprüchen 1 bis 5 der Anmeldung. Die beabsichtigten Einschränkungen gehen daher im Widerspruch zu den Erfordernissen des Artikels 6 PCT nicht klar aus dem Anspruch hervor.

Die Definition der Katalysatoren (Seite 9, Zeile 23 bis Seite 10, Zeile 2) ist zu allgemein, um eine Einschränkung gegenüber den Stand der Technik zu ermöglichen. Die genannten Trägermaterialien können auch für Crackkatalysatoren verwendet werden.

			۲
			•
	•		

10

20

Patentansprüche

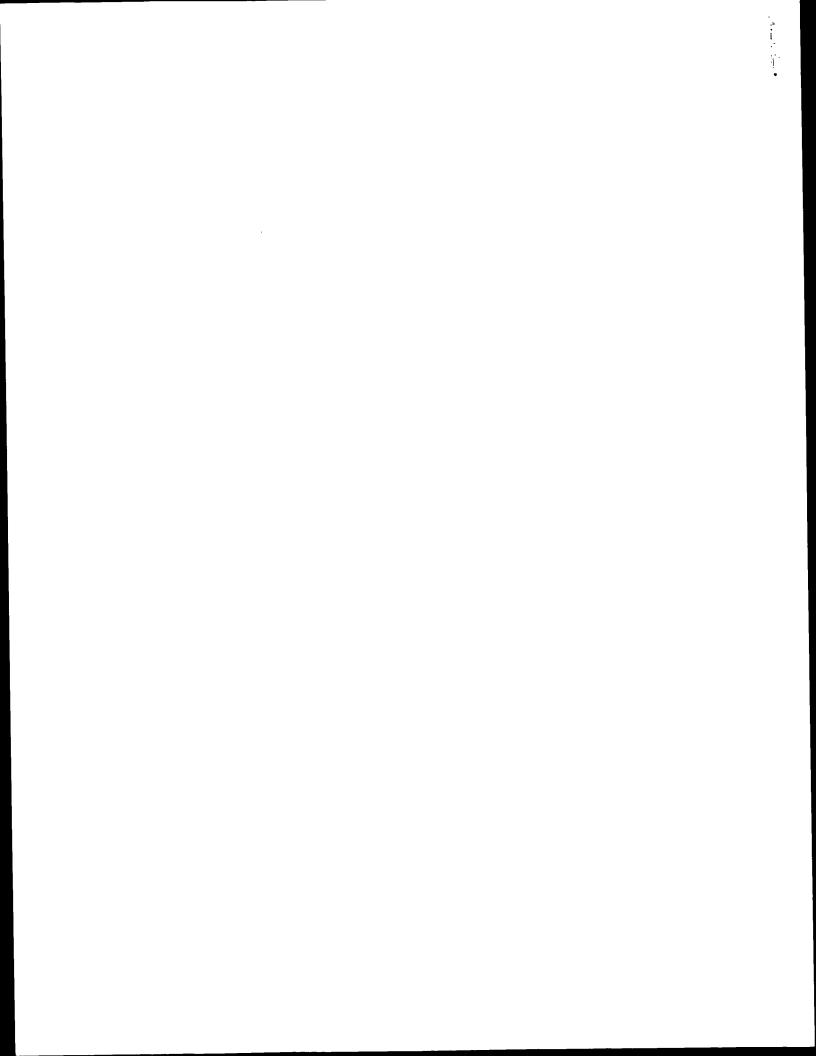
- Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern für die Polymerisation von Olefinen durch
 - a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors,
 - b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor,
 - c) Behandlung der Katalysator- oder der Katalysatorträger-Partikeln in der Wirbelschicht und
 - d) Entladung des Reaktors, wobei ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden (2) eingesetzt wird.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zur
 Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln ein oder mehrere Abscheideorgane eingesetzt werden.
 - 3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheideorgan(e) ein oder mehrere Zyklone (4) verwendet werden.
 - 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Behandlung des Katalysators oder des Katalysatorträgers (Stufe c) eine Aktivierung und/oder eine Kalzinierung ist.
- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß auch Flüssigkeiten und/oder zusätzliche Feststoffe und/oder zusätzliche Gase in die Wirbelschicht eingebracht werden.
- 6. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 2 bis 5, enthaltend folgende Einrichtungen:
 - i) einen Reaktormantel mit einem sich nach unten verjüngenden, bevorzugt konisch ausgebildeten Reaktorboden (2),

	·	•
	,	

10

15

- ii) ein unterhalb des Reaktorbodens (2) befindliches Rohr (9) zur Gaseinleitung in den Reaktor, das mit einem Gaseinlaßrohr für den Gaseingang (7) verbunden ist,
- iii) eine unterhalb des Reaktorbodens befindliche Vorrichtung zur Entladung des Reaktors (3) und
- iv) ein Abscheideorgan.
- 7. Reaktor nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß der sich nach unten verjüngende Reaktorboden (2) konisch ausgebildet ist.
- Reaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der konisch ausgebildete Reaktorboden (2) einen zwischen den beiden inneren Mantelflächen gemessenen Konuswinkel α von 10° - 120°, bevorzugt von 30° - 80° aufweist.
 - Reaktor nach einem der Ansprüche 6 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Winkel β, der zwischen dem Gaseinlaßrohr des Gaseingangs (7) und der Vertikalen nach oben gemessen wird, 20° - 70°, bevorzugt 30° - 60° beträgt.
- 20 10. Reaktor nach einem der Ansprüche 6 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheidorgan ein Zyklon eingesetzt wird.
 - 11. Polyolefine hergestellt mittels Katalysatoren oder Katalysatorträgern gemäß dem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5.



PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM

Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE

INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7: (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: **WO** 00/21655 B01J 8/24, 8/00, 8/18 **A3**

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

20. April 2000 (20.04.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/07837

DE

(22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)

(81) Bestimmungsstaaten: CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(30) Prioritätsdaten:

198 47 647.7

15. Oktober 1998 (15.10.98)

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): ELENAC GMBH [DE/DE]; D-77694 Kehl (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DE LANGE, Paulus Hermann-Loens-Weg 5, D-67117 Limburgerhof (DE). SCHÖNFELDER, Hendrik [DE/DE]; D 3,3, D-68159 Mannheim (DE). KÄMMERER, Michael [DE/DE]; Kastanienweg 38, D-50389 Wesseling (DE). SIEBENHANDL, Hans, Wemer [DE/DE]; Am Kuckucksbusch 1, D-53913 Swisttal (DE). EVERTZ, Kaspar [DE/DE]; Stettiner Strasse 13, D-67105 Schifferstadt (DE). WIETFELDT-HALTENHOFF, Stefan [DE/DE]; Paul-Klee-Strasse 48, D-50374 Erftstadt (DE). WERTHER, Joachim [DE/DE]; Tostedter Weg 39, D-21244 Buchholz (DE).

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 13. Juli 2000 (13.07.00)

(54) Title: FLUIDIZED BED METHOD AND REACTOR FOR THE TREATMENT OF CATALYSTS AND CATALYST CARRIERS

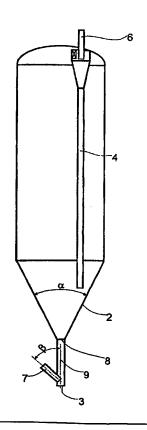
(54) Bezeichnung: WIRBELSCHICHTVERFAHREN UND REAKTOR ZUR BEHANDLUNG VON KATALYSATOREN UND KATALYSATORTRÄGERN

(57) Abstract

The invention relates to a method for the treatment of catalysts or catalyst carriers by: a) introducing and distributing a gas in the lower section of a reactor containing a catalyst or catalyst carrier bulk material; b) forming a fluidized bed in the reactor, c) treating the particles in the fluidized bed while removing the fine particles and/or retaining the coarse particles by means of a separating organ and (d) discharging the reactor. To this end, a reactor bottom tapering downwards is used.

(57) Zusammenfassung

Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch: a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors; b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor, c) Behandlung der Partikeln in der Wirbelschicht, dabei Entfermung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln durch ein Abscheideorgan; und d) Entladung des Reaktors. Dabei wird ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden eingesetzt.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

ΑL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	п.	Israei	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	TT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Inte. onal Application No PCT/EP 99/07837

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 B01J8/24 B01J B01J8/00 B01J8/18 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B01J C08F Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category ° Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. US 4 038 038 A (BUNN DORRANCE P, STRICKLAND X 1-3,5,6,JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 8-10,12 26 July 1977 (1977-07-26) Υ column 1, line 60 -column 5, line 55 7,13 figure 1 US 4 518 750 A (GOVONI GABRIELE ET AL) χ 1,8-10 21 May 1985 (1985-05-21) column 4, line 1 - line 27 figure 1 EP 0 101 893 A (BASF AG) Α 1,8-10 7 March 1984 (1984-03-07) page 3, line 29 -page 4, line 12 claims 1-5; figures 1,2 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex. ° Special categories of cited documents : "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance invention earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention filing date cannot be considered novel or cannot be considered to document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention citation or other special reason (as specified) cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or ments, such combination being obvious to a person skilled document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 0 3. 05, 00 11 April 2000 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016 Vlassis, M

2

Inte onal Application No
PCT/EP 99/07837

		PC1/EP 99/0/63/			
(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.			
Y	US 4 229 608 A (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21 October 1980 (1980-10-21) column 5, line 1 - line 33 figure 1	7,13			
Y	US 4 197 418 A (LEE WOOYOUNG, YURCHAK SERGEI) 8 April 1980 (1980-04-08) column 7, line 59 -column 10, line 28 claims 1,2,7; figure 1	7,13			

2

International application No. PCT/EP99/07837

Box I	Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)
This inte	ernational search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:
1.	Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2.	Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3.	Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box II	Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)
This Inte	rnational Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
See	Supplemental Sheet
	ed on the results of the preliminary examination, no adultoring to PCT Rule 40.2(e).
1.	As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.	As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.	As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4.	No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
Remark (The additional search fees were accompanied by the applicant's protest. No protest accompanied the payment of additional search fees.

International application No. PCT/EP99/07837

The International Searching Authority has found that this international application contains several (groups of) inventions as follows:

1. Claims: 1-6, 8-12

Independent claim 1 describes a method for the treatment of catalysts or catalyst carriers in a fluidized bed reactor. Independent claim 8 contains a reactor for implementing the above-mentioned method. Additional details of the method or the reactor are described in claims 2-6 or 9-12 dependent on claims 1 and 8.

2. Claims: 7, 13

Independent claim 7 relates to the use of treated catalysts or catalyst carriers in the production of polyolefins. Independent claim 13 contains polyolefins produced using treated catalysts or catalyst carriers.

Information on patent family members

Interional Application No
PCT/EP 99/07837

	t document search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 40	38038	A	26-07-1977	AR	223804 A	30-09-1981
				AU	500862 B	07-06-1979
	•			AU	2026276 A	08-06-1978
				BR	7702258 A	08-08-1978
				CA	1082428 A	29-07-1980
				DE	2657601 A	17-11-1977
				FI	763639 A,B,	08-11-1977
				FR	2350139 A	02-12-1977
				GB	1535797 A	13-12-1978
				IT	1123099 B	30-04-1986
				JP	52136202 A	14-11-1977
				MX	157158 A	31-10-1988
				NL	7614611 A	09-11-1977
				SE	436695 B	21-01-1985
				SE	7614674 A	08-11-1977
				TR	19380 A	20-02-1979
				YU	317576 A	28-02-1983
US 45	518750	Α	21-05-1985	IT	1150650 B	17-12-1986
				AT	15773 T	15-10-1985
				AU	566343 B	15-10-1987
				AU	1207483 A	15-09-1983
				CA	1198582 A	31-12-1985
				EP	0088638 A	14-09-1983
				JP	1724740 C	24-12-1992
				JP	4005488 B	31-01-1992
				JP	58216735 A	16-12-1983
EP 0	101893	Α	07-03-1984	DE	3227932 A	02-02-1984
				JP 	59042039 A 	08-03-1984
US 42	229608	Α	21-10-1980	BR	7908261 A	23-09-1980
				DE	2949169 A	26-06-1980
				NZ	192047 A	13-07-1981
				ZA	7906290 A	24-06-1981
US 4	197418	Α	08-04-1980	AU	535722 B	05-04-1984
				AU	5604280 A	04-09-1980
				AU	534938 B	23-02-1984
				AU	5604380 A	04-09-1980
				BR	8001261 A	04-11-1980
				BR	8001353 A	11-11-1980
				CA	1140882 A	08-02-1983
				CA	1140883 A	08-02-1983
				EP	0015715 A	17-09-1980
				EP	0015716 A	17-09-1980
				JP	1576676 C	24-08-1990
				JP	2003437 B	23-01-1990
				JP JP	55118422 A 1487759 C	11-09-1980 23-03-1989
				JP JP	55144088 A	10-11-1980
				JP JP	63038392 B	29-07-1988
				NZ	193023 A	15-12-1981
				NZ NZ	193023 A 193024 A	23-03-1982
				ZA	8001187 A	25-02-1981
					8001187 A	25-02-1981
				ZA	AUDITE A	/ 7 - 1 1 / - 1 / - 1

		•
		4 1
		•
		₹

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

onales Aktenzeichen

PCT/EP 99/07837 a. klassifizierung des anmeldungsgegenstandes IPK 7 B01J8/24 B01J8/00 B01J8/18 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) B01J C08F Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch Nr. Kategorie® 1-3,5,6,US 4 038 038 A (BUNN DORRANCE P, STRICKLAND X JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 8-10,12 26. Juli 1977 (1977-07-26) Spalte 1, Zeile 60 -Spalte 5, Zeile 55 7,13 Abbildung 1 US 4 518 750 A (GOVONI GABRIELE ET AL) 1,8-10X 21. Mai 1985 (1985-05-21) Spalte 4, Zeile 1 - Zeile 27 Abbildung 1 EP 0 101 893 A (BASF AG) 1,8-10Α 7. März 1984 (1984-03-07) Seite 3, Zeile 29 -Seite 4, Zeile 12 Ansprüche 1-5; Abbildungen 1,2 Siehe Anhang Patentfamilie Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist Absendedatum des internationalen Recherchenberichts Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 11. April 2000 0 3. 05. 00 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016

2

Vlassis, M

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter onales Aktenzeichen
PCT/EP 99/07837

		PCT/EP 99/07837				
C.(Fortsetz	C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN					
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komme	nden Teile	Betr. Anspruch Nr.			
Y	US 4 229 608 A (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21. Oktober 1980 (1980-10-21) Spalte 5, Zeile 1 - Zeile 33 Abbildung 1		7,13			
Y	Abbildung 1 US 4 197 418 A (LEE WOOYOUNG, YURCHAK SERGEI) 8. April 1980 (1980-04-08) Spalte 7, Zeile 59 -Spalte 10, Zeile 28 Ansprüche 1,2,7; Abbildung 1		7,13			

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 99/07837

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar	erwiesen naben (Forsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)
Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein F	lecherchenbericht erstellt:
Ansprüche Nr. weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde ni	cht verpflichtet ist, nämlich
Ansprüche Nr. weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorg daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann	
Ansprüche Nr. weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend	Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.
Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortset	zung von Punkt 3 auf Blatt 1)
Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anme	eldung mehrere Erfindungen enthält:
siehe Zusatzblatt	
Aufgrund des Ergebnisses der vorläufigen Über gemäss Regel 40.2(e) PCT sind keine zusätzlich	rprüfung chen Gebühren zu erstatten.
Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rech internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.	ntzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser
2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsal zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zu	ufwand durchgeführt werden konnte, der eine ir Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengeb internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren e Ansprüche Nr.	ühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser entrichtet worden sind, nämlich auf die
4. Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nich chenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähr faßt:	nt rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recher- nte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen er-
	nren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt. er Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1-6,8-12

Im unabhängigen Anspruch 1 wird ein Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern in einem Wirbelschichtreaktor beschrieben. Der unabhängige Anspruch 8 enthält ein Reaktor zur Durchführung des o.g. Verfahrens. In den von Ansprüchen 1 und 8 abhängigen Ansprüche 2-6, bzw. 9-12 werden weitere Details des Verfahrens, bzw. des Reaktors beschrieben.

2. Ansprüche: 7,13

Der unabhängige Anspruch 7 bezieht sich auf die Verwendung von behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträgern zur Herstellung von Polyolefinen. Der unabhängige Anspruch 13 enthält Polyolefine hergestellt mittels behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträgern.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inter nales Aktenzeichen
PCT/EP 99/07837

Im Recherchenberich geführtes Patentdokur	nt ment	Datum der Veröffentlichung		glied(er) der atentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4038038	A	26-07-1977	AR AU BR CA DE FR GB IT JP MX NL SE TR YU	223804 A 500862 B 2026276 A 7702258 A 1082428 A 2657601 A 763639 A,B, 2350139 A 1535797 A 1123099 B 52136202 A 157158 A 7614611 A 436695 B 7614674 A 19380 A 317576 A	30-09-1981 07-06-1979 08-06-1978 08-08-1978 29-07-1980 17-11-1977 08-11-1977 02-12-1977 13-12-1978 30-04-1986 14-11-1977 31-10-1988 09-11-1977 21-01-1985 08-11-1977 20-02-1979 28-02-1983
US 4518750	Α	21-05-1985	IT AT AU AU CA EP JP JP	1150650 B 15773 T 566343 B 1207483 A 1198582 A 0088638 A 1724740 C 4005488 B 58216735 A	17-12-1986 15-10-1985 15-10-1987 15-09-1983 31-12-1985 14-09-1983 24-12-1992 31-01-1992 16-12-1983
EP 0101893	Α	07-03-1984	DE JP	3227932 A 59042039 A	02-02-1984 08-03-1984
US 4229608	Α	21-10-1980	BR DE NZ ZA	7908261 A 2949169 A 192047 A 7906290 A	23-09-1980 26-06-1980 13-07-1981 24-06-1981
US 4197418	A	08-04-1980	AU AU AU BR CA EP JP JP JP JP NZ ZA	535722 B 5604280 A 534938 B 5604380 A 8001261 A 8001353 A 1140882 A 1140883 A 0015715 A 0015716 A 1576676 C 2003437 B 55118422 A 1487759 C 55144088 A 63038392 B 193023 A 193024 A 8001187 A	05-04-1984 04-09-1980 23-02-1984 04-09-1980 04-11-1980 11-11-1980 08-02-1983 17-09-1980 17-09-1980 24-08-1990 23-01-1990 11-09-1980 23-03-1989 10-11-1980 29-07-1988 15-12-1981 23-03-1982 25-02-1981

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation $\overline{7}$:

B01J 8/00

A2

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/21655

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

20. April 2000 (20.04.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/07837

DE

(22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 47-647.7

15. Oktober 1998 (15.10.98)

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): ELENAC GMBH [DE/DE]; D-77694 Kehl (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DE LANGE, Paulus [NL/DE]; Hermann-Loens-Weg 5, D-67117 Limburgerhof (DE). SCHÖNFELDER, Hendrik [DE/DE]; D 3,3, D-68159 Mannheim (DE). KÄMMERER, Michael [DE/DE]; Kastanienweg 38, D-50389 Wesseling (DE). SIEBENHANDL, Hans, Wemer [DE/DE]; Am Kuckucksbusch 1, D-53913 Swisttal (DE). EVERTZ, Kaspar [DE/DE]; Stettiner Strasse 13, D-67105 Schifferstadt (DE). WIETFELDT-HALTENHOFF, Stefan [DE/DE]; Paul-Klee-Strasse 48, D-50374 Erftstadt (DE). WERTHER, Joachim [DE/DE]; Tostedter Weg 39, D-21244 Buchholz (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht

Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

(54) Title: FLUIDIZED BED METHOD AND REACTOR FOR THE TREATMENT OF CATALYSTS AND CATALYST CARRIERS

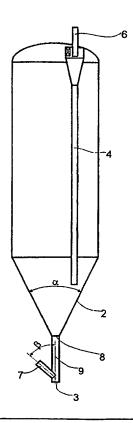
(54) Bezeichnung: WIRBELSCHICHTVERFAHREN UND REAKTOR ZUR BEHANDLUNG VON KATALYSATOREN UND KATALYSATORTRÄGERN

(57) Abstract

The invention relates to a method for the treatment of catalysts or catalyst carriers by: a) introducing and distributing a gas in the lower section of a reactor containing a catalyst or catalyst carrier bulk material; b) forming a fluidized bed in the reactor; c) treating the particles in the fluidized bed while removing the fine particles and/or retaining the coarse particles by means of a separating organ and (d) discharging the reactor. To this end, a reactor bottom tapering downwards is used.

(57) Zusammenfassung

Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch: a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors; b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor, c) Behandlung der Partikeln in der Wirbelschicht, dabei Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln durch ein Abscheideorgan; und d) Entladung des Reaktors. Dabei wird ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden eingesetzt.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GН	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
ВJ	Benin	Œ	Irland	MIN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	\mathbf{PL}	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Wirbelschichtverfahren und Reaktor zur Behandlung von Katalysatoren und Katalysatorträgern

10

Die Erfindung betrifft ein Wirbelschichtverfahren, einen Reaktor zur Behandlung von Katalysatoren und Katalysatorträgern und die Verwendung der Verfahrensprodukte bei der Polyolefinherstellung.

15

20

25

Wenn auf perforieren Böden lagerndes feinkörniges Schüttgut von unten von Gasen durchströmt wird, stellt sich unter bestimmten Strömungsbedingungen ein Zustand ein, der dem einer kochenden Flüssigkeit ähnelt - die Schicht wirft Blasen auf, und die Teilchen des Schüttgutes befinden sich innerhalb der Schicht in einer ständigen, wirbelnden Auf- und Abbewegung und bleiben so gewissermaßen in der Schwebe. Man spricht in diesem Zusammenhang auch von Fließbett, Wirbelbett oder Wirbelschicht. Ein solcher Zustand entsteht, wenn ein bestimmter Grenzwert der Geschwindigkeit des von unten durchströmenden Gases gegen die Schwerkraft des Festteilchen erreicht wird. Dieser Punkt, an dem die ruhende in eine wirbelnde Schicht, das Festbett in eine Wirbelschicht übergeht, wird als Lockerungs- oder Wirbelpunkt bezeichnet. Das Erreichen dieses Punktes hängt von einer Reihe physikalischer Faktoren ab; diese sind z.B. Dichte, Größe, Verteilung und Form der Teilchen und Eigenschaften des Wirbelfluids.

30

Die Wirbelschicht kann wie eine Flüssigkeit durch Öffnungen ausströmen, durch Rohre befördert werden, oder auf geneigter Unterlage, z.B. einer Förderrinne, abfließen. Bei weiterer Erhöhung der Geschwindigkeit des Wirbelfluids expandiert die Schicht immer stärker und es bilden sich Blasen. Oberhalb einer Grenzgeschwindigkeit werden die Teilchen als Flugstaub aus dem Behälter

hinausgetragen, können aber in einem nachgeschalteten Abscheideorgan wieder vom Gasstrom separiert und dem Reaktor zugeführt werden.

Ein zweckmäßiges Abscheideorgan ist ein sogenannter Zyklon. Bei einem solchen Zyklon erfolgt die Abscheidung der Partikeln mit Hilfe der Zentrifugalkraft. Zyklone bestehen im Prinzip aus einem zylindrischen Gefäß mit konisch zulaufendem Boden, in das im oberen Bereich ein Staubluft-Eintrittsrohr tangential und ein Reinluft-Austrittsrohr vertikal hineinragen. Der tangential eintretende Gas/Staub-Strom induziert eine Wirbelströmung, wobei die gröberen Staubteilchen durch die Zentrifugalkraft an die Wand des Zylinders geschleudert werden und von dort durch die Schwerkraft zu Boden sinken, von wo sie ausgetragen werden können. Der kreisende, vom Staub befreite Gaswirbel kehrt am Boden des Zyklons seine Richtung um und verläßt den Zyklon nach oben durch das Austrittsrohr zusammen mit eventuell feineren Partikeln, denn das Trennprinzip reicht nicht aus, um Feinstaub-Verunreinigungen vollständig zu beseitigen. Zyklone werden in der Technik vorwiegend zur Entstaubung eingesetzt.

10

15

20

Zyklone sind bei vielen Wirbelschichtverfahren eine wichtige Komponente. Wirbelschichtverfahren werden für eine große Anzahl von technischen Prozessen angewendet. Dabei kann der Feststoff der Wirbelschicht z.B. entweder als Katalysator (Fließbett-Katalysator) oder als Wärmeübertragungsmittel wirken, oder dieser kann selbst an der Reaktion teilnehmen. Wichtige Prozesse, die als Wirbelschichtverfahren ausgeführt werden sind:

Gasphasenpolymerisation, Kohleverbrennung, Kohleverflüssigung und Fischer-Tropsch-Synthese, katalytisches Cracken von Kohlenwasserstoffen, Rösten sulfidischer Erze, Kalzinieren von Tonerdehydrat, Kalkbrennen, Entschwefelung von Gasen, katalytische Dehydrierung benzinreicher Naphten-Fraktionen, Destillation von Öl aus bituminösem Sand, Oxidation von Naphthalin zu Phthalsäureanhydrid an Vanadiumoxid, Beseitigung von Fluor bei der Phosphat-Gewinnung, Herstellung von Acrylnitril, Dichlorethan, CCI4, TiCI4, Trocknung von Braunkohle und Granulaten (z.B. aus PVC, Salpeter, Kalisalzen, Holzmehl,

WO 00/21655 PCT/EP99/07837

Kochsalz, Farben, pharmazeutischen Präparaten, Insektiziden, selbst Mikroorganismen), aromaschonende Trocknung oder Röstung von Nahrungs- und Genußmitteln (Bohnenkaffee, Kakao, Erdnüssen, Getreideprodukten, Maisstärke, Reis, Tee und vielen anderen), die Verbrennung von Abfällen, Müll, Sondermüll und Klärschlamm, oder physikalische Vorgänge wie die Abtrennung von kleinen Teilchen oder Mischen.

Im folgenden sollen Wirbelschichtverfahren zur Behandlung von Katalysatoren, Initiatoren, Katalysatorträgern, Initiatorträgern und von mit Initiatoren oder Katalysatoren behandelten Trägermaterialien betrachtet werden. Obwohl streng definitionsgemäß zwischen Initiatoren und Katalysatoren differenziert werden muß, sind nachstehend unter Katalysatoren auch Initiatoren zu verstehen (häufig ist nur schwer erkennbar, ob eine Reaktion initiert oder katalysiert wird). Entsprechend werden im folgenden mit aktiven Komponenten - zum Beispiel Katalysatoren - behandelte Trägermaterialien auch als Katalysatoren bezeichnet.

Zur Behandlung von Katalysatorträgern oder Katalysatoren (zum Beispiel für deren Einsatz in der Olefinpolymerisation), werden Wirbelschichtreaktoren verwendet, bei denen die Partikeln durch einen nach oben gerichteten Gasstrom bewegt werden, mit dem diese in intensivem Stoff- und Wärmeaustausch stehen. Im zeitlichen Verlauf des Prozesses werden die Partikeln aufgeheizt und unterliegen einer physikalisch/chemischen Veränderung. Nach Beendigung der Umwandlung werden die Partikeln abgekühlt und aus dem Reaktor entladen. Besondere Aufmerksamkeit legt man bei der Gestaltung der Reaktoren auf die:

25

5

10

15

20

- A) Gasverteilung am Eintritt
- B) Abscheidung von feinen Partikeln aus dem Gasstrom, der den Reaktor verläßt
- C) Entladevorrichtung

zu A) (Gasverteilung)

5

10

15

20

25

Zur Verteilung des Gases werden flache, gewölbte oder geneigte Bleche in den unteren Bereich des Reaktors eingesetzt, wobei die Bleche mit verschiedenartigen Durchlässen für das Gas versehen sind. Diese Durchlässe sind im einfachsten Fall Bohrungen, können aber auch geeignete Einsätze sein, z.B. Glocken oder Schrauben. Zur zuverlässig gleichmäßigen Verteilung des Gases benötigt ein solcher Gasverteilerboden einen Druckverlust zwischen mindestens 10 und 20 mbar. Eine vorteilhafte Verteilung des Gases kann dadurch behindert werden, daß die Durchlässe für das Gas durch die Partikeln verstopfen.

Bei manchen Schüttungen, bestehend aus Partikeln bestimmter Materialien und Größe, wird bei der Einleitung von Gas in einen der beschriebenen Reaktoren das Phänomen der Kanalbildung beobachtet. Dabei bildet sich keine Wirbelschicht aus, sondern das Gas strömt durch die Durchlässe des Blechs senkrecht nach oben durch die Schüttung hindurch. Auch bei Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit des Gases verharren dann die Partikeln in der Schüttung.

Die Verteilung des Gases spielt auch bei der Behandlung von Partikeln mit Flüssigkeiten, die in die Wirbelschicht eingesprüht werden, ein Rolle. Diese Flüssigkeiten können z.B. als Binder für die Partikeln fungieren, welche so agglomerieren und während des Trocknens größere Agglomerate bilden. Eine optimale Verteilung der eingesprühten Flüssigkeit durch das Wirbelgas ist entscheidend, um einerseits die Agglomeration fester Teilchen und andererseits die Belagbildung an den Reaktorwänden durch Anlagerung von Feststoff zu vermeiden [Daizo Kunii, Octave Levenspiel, "Fluidization Engineering", Verlag Butterworth-Heinemann (Stoneham), zweite Auflage (1991), Seite 24].

10

15

zu B) (Abscheidung)

Am Auslaß des Reaktors wird das Gas über ein geeignetes Abscheideorgan geführt, mit dem man mitgerissene Partikeln abtrennt, um diese im Reaktor zu halten. Solche Abscheideorgane können Filterelemente sein, die direkt in den Reaktionsraum eingehängt werden. Der Nachteil dieser Filterelemente besteht darin, daß diese verstopfen und deshalb regelmäßig gereinigt oder ausgewechselt werden müssen. Vorteilhaft ist der Einsatz von einem Zyklonabscheider, der im wesentlichen wartungsfrei ist und im Gegensatz zu einem Filter die Fähigkeit hat, sehr feine Partikeln aus dem Reaktor herauszulassen und gröbere Partikeln zuverlässig zurückzuhalten. Diese Eigenschaft kann sich positiv auf die Qualität des erzeugten Wirbelgutes auswirken, da sehr feine Partikeln in einer späteren Anwendung oft unerwünscht sind. Kleinste Katalysatorteilchen können beispielsweise bei späteren Polymerisationen unerwünschte sogenannte hot-spots hervorrufen.

Zu C) (Entladen)

20

25

30

Katalysator oder Katalysatorträger werden nach Abschluß der Behandlung über geeignet zu sperrende Ventile aus dem Reaktor entladen. Die Öffnungen sind dabei in den Boden eingelassen, um den Anteil der im Reaktor verbleibenden Partikeln zu minimieren. Notwendigerweise müssen Katalysator oder Katalysatorträger beim Entladevorgang die Durchlässe des Gasverteilerbodens passieren. Dabei sollte das Gas weiter durch den Boden strömen können, um die Beweglichkeit der Partikeln sicherzustellen (letztere "rutschen" nicht selbständig zum Auslaß, so daß die Benutzung des Wirbelgases während der Entleerung notwendig ist). Der Einsatz von Wirbelgas während der Entleerung behindert jedoch die vorteilhafte Verwendung eines Zyklonabscheiders:

Während des Entleerens sinkt der Stand des Wirbelbettes bis unterhalb des Ablaufrohrendes des Zyklons, und aufgrund der dadurch entstehenden Kurzschlußgase wird die Abscheideleistung des Zyklons stark herabgesetzt, so daß auch gröbere Partikeln aus dem Reaktor herausgetragen werden. Dies führt zwangsläufig zu Materialverlust.

Ein weiterer Nachteil besteht darin, daß vorstehend beschriebene Reaktoren nicht vollständig entleert werden können, da auf den Böden stets Material verbleibt. Die Rückstände werden zusammen mit frischen Partikeln einem zweiten Durchgang unterworfen, so daß Material erzeugt wird, das unterschiedliche Verweilzeiten aufweist. Solches ist in der Regel von ungleichmäßiger, meist schlechterer Qualität als Material, das einheitliche Verweilzeiten aufweist.

Der Erfindung liegt deshalb die Aufgabe zugrunde, das vorstehend beschriebene Wirbelschichtverfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern so zu verbessern, daß keine Kanalbildung erfolgt, eine vorteilhafte Anwendung eines Zyklons möglich ist und eine zügige und zumindest nahezu vollständige, d.h. rückstandsfreie Entladung des Reaktors erfolgt.

- 20 Die Lösung dieser Aufgabe ist dann ein Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch
 - a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysatoroder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors,
- 25 b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor,
 - c) Behandlung der Katalysator- oder Katalysatorträger-Partikeln in der Wirbelschicht und
 - d) Entladung des Reaktors,

5

10

30 wobei ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden eingesetzt wird.

In einer bevorzugten Ausführungsform wird zur Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln ein Abscheideorgan eingesetzt.

Erfindungsgemäß wird auch eine Vorrichtung zur Durchführung dieses letzteren 5 Verfahrens bereitgestellt, wobei diese folgende Einrichtungen enthält:

- i) einen Reaktormantel mit einem sich nach unten verjüngenden, bevorzugt konisch ausgebildeten Reaktorboden,
- ii) ein unterhalb des Reaktorbodens befindliches Rohr zur Gaseinleitung in den Reaktor, das mit einem Gaseinlaßrohr für den Gaseingang verbunden ist,
 - iii) eine unterhalb des Reaktorbodens befindliche Vorrichtung zur Entladung des Reaktors und
 - iv) ein oder mehrere Abscheideorgane.

10

Die erfinderische Lösung, für die Gasverteilung beim zugrundeliegenden Wirbel-15 schichtverfahren einen sich nach unten verjüngenden Reaktorboden bereitzustellen, beruht vermutlich darauf, daß überraschenderweise die zu behandelnden Partikeln bei dem Verfahren kaum beschädigt oder desaktiviert werden. Mit sich nach unten verjüngenden Reaktorböden sind solche gemeint, deren Querschnittsfläche sich nach unten reduziert. Prinzipiell kommen symmetrische und unsymmetrische Formen in 20 Frage. Geeignet ist zum Beispiel ein Pyramidenstumpf, insbesondere aber ein Kegelstumpf - also ein konisch ausgebildeter Reaktorboden. Bei Verwendung dieser sich nach unten verjüngenden Reaktorböden liegt neben der Wirbelschicht stets eine im unteren Bereich des Bodens befindliche, die Mantelinnenseite umgebende Schüttung vor. In dieser findet laufend ein Austausch von Material statt, wobei 25 Partikeln der Wirbelschicht auf die Schüttung gelangen und andererseits durch "Abrutschen" von Partikeln in den Gaseinleitungsbereich Material aus der Schüttung abgeführt und der Wirbelschicht wieder zugeführt wird. Durch die Wärmeübertragung von der Reaktorwand auf die Schüttung können in letzterer unerwünscht hohe Temperaturen auftreten. Mögliche Folgen wären z.B. Desaktivierung des 30 Katalysators oder Sintervorgänge, durch die Agglomerate entstehen und/oder die Poren des Katalysators oder des Katalysatorträgers verstopfen.

Diese Nachteile treten bei dem erfindungsgemäßen Verfahren nicht oder kaum auf - möglicherweise deshalb, da sich die Katalysator-Partikeln nur sehr kurzzeitig in der Schüttung aufhalten.

5

Vorteilhaft wirkt sich die Schüttung dadurch aus, daß Kanalbildung verhindert wird (das laufende Abrutschen von Partikeln an der Mantelwandung würde jeden "Kanal" sofort verschließen). Außerdem begünstigt die Schüttung aufgrund ihrer kegelförmigen Struktur die gleichmäßige Verteilung des Wirbelgases.

10

15

20

25

30

In der anliegenden Zeichnung sind dargestellt, in Fig. 1 ein Gasverteilerboden 1, eine Vorrichtung zur Entladung des Reaktors 3, Filterelemente 5, ein Gasauslaß 6, ein Gaseingang 7 und in Fig. 2 ein Reaktorboden 2, eine Vorrichtung zur Entladung des Reaktors 3, ein Zyklon 4, ein Gasauslaß 6, eine Gaseingang 7, ein Konusstumpf 8, ein Rohr zur Gaseinleitung in den Reaktor 9 ein Konuswinkel α und ein Winkel β .

Da der erfindungsgemäße Reaktor (Fig. 2) im Gegensatz zu dem bisher überlicherweise verwendeten Reaktortyp (Fig.1) keinen Gasverteilerboden 1 aufweist, entfällt einerseits der Druckverlust, der damit verbunden wäre, und andererseits vereinfacht sich die Entleerung des Reaktors, die ohne die Aufstellung von Wirbelgas erfolgt. Der konisch ausgebildete Reaktorboden 2 ermöglicht es, Katalysator bzw. Katalysatorträger mit größerer Effizienz aus dem Reaktor auszuschleusen, da dieser an der Wandung abrutscht und vollständig oder nahezu vollständig zur Entladevorrichtung 3 gelangt, ohne größere Rückstände im Reaktor zu hinterlassen. Die Entladung des Reaktors kann somit rückstandsfrei oder nahezu rückstandsfrei (d.h. zu mindestens 99%, bevorzugt zu mindestens 99,5% erfolgen). Es ist vorteilhaft, wenn der konische Reaktorboden 2 des Reaktors einen zwischen beiden inneren Mantelflächen gemessenen Konuswinkel α von 10° bis 120°, bevorzugt von 30° bis 80° aufweist. Die Enladevorrichtung 3 (zum Beispiel ein Rohr) befindet sich in der Regel am unteren Ende des Rohrs 9, das zur Gaseinleitung in den Reaktor dient. Damit erfüllt auch das Rohr 9 teilweise eine Funktion zur

Enladung des Reaktors. Die Entladung erfolgt in der Regel deutlich schneller als bei entsprechenden Reaktoren, die einen Gasverteilerboden 1 aufweisen.

Zur Abscheidung mitgerissener Partikeln kann der Kopf des Reaktors eine Querschnittserweiterung aufweisen. Zusätzliche Abscheideorgane können insbesondere im Bereich dieser Erweiterung angebracht werden.

Ein weiterer wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Reaktors ist, daß als Abscheideorgan vorteilhaft ein Zyklon 4 verwendet werden kann, d.h., daß ohne Materialverlust beim Entleeren des Reaktors in Kauf nehmen zu müssen, ein effektiver und zuverlässiger Feingutaustrag ermöglicht wird. Die Nachteile der beim bisher üblicherweise verwendeten Verfahren eingesetzten Filterelemente 5, die sich unterhalb des Gasauslasses 6 befinden, sind einleitend beschrieben worden. Das verwendete Abscheideorgan dient in jedem Fall dazu, feinere Partikeln zu entfernen und/oder gröbere zurückzuhalten.

10

15

20

25

30

Von Bedeutung ist auch die Einführung des Trägergases am Gaseingang 7. Da bei der Be- und Entladung möglichst keine Partikeln in den Gaseingang 7 gelangen sollen, sollte das entsprechende Einlaßrohr nach oben geneigt sein. Der Winkel β , der zwischen dem Gaseinlaßrohr des Gaseingangs 7 und der Vertikalen nach oben gemessen wird, beträgt insbesondere 20° bis 70°, bevorzugt 30° bis 60°.

Die im erfindungsgemäßen Verfahren behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträger werden insbesondere bei der Olefinpolymerisation eingesetzt, wobei die zu behandelnden Partikeln in der Regel in Form von festen Partikeln dem Reaktor zugeführt werden. Solche Polyolefin-Katalysatoren enthalten häufig dotierte Trägermaterialien (zum Beispiel auf der Basis von Kieselgel). Als Aktivkomponenten dienen dabei zum Beispiel Übergangsmetalle wie Chrom oder Titan. Trägermaterialien können beispielsweise oxidische Verbindungen, wie Silika, Alumina, Silika-Alumina, Zirkonia, Thoria, fluoriertes Silika, fluoriertes Alumina, fluoriertes Silika-Alumina, Boroxide oder deren Mischungen sein. Eine

zusätzliche Oberflächenmodifikation der Trägermaterialien kann besonders vorteilhaft sein. Die Behandlung der Katalysatoren oder der Katalysatorträger ist in der Regel eine Kalzinierung und/oder Aktivierung.

Während der Behandlung können neben dem durch den Gaseingang 7 eingeführten Trägergas (Wirbelgas) auch zusätzliche Gase und neben den ursprünglich vorgelegten Partikeln auch zusätzlicher Feststoff mit in die Wirbelschicht eingebracht werden. Diese Einbringung kann zu jedem Zeitpunkt des Prozesses und durch an beliebigen Orten angebrachte Zufuhrstellen erfolgen. Als zusätzliche Gase kommen beispielsweise Sauerstoff, Kohlendioxid oder Wasserdampf in Frage, während als zusätzliche Feststoffe beispielsweise Ammoniumhexafluorosilikat, unbehandelter Katalysatorträger oder Katalysatoren anderer physikalisch/chemischer Struktur eingesetzt werden können. Außerdem können auch Flüssigkeiten, beispielsweise Wasser, in die Wirbelschicht eingesprüht werden.

Somit können Flüssigkeiten, zusätzliche Feststoffe und/oder zusätzliche Gase mit in den Reaktor eingebracht werden.

Im folgenden wird die Behandlung gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren anhand von Ausführungsbeispielen näher beschrieben.

20

25

30

Beispiel 1 (Kalzinierung)

In einem Reaktor aus Stahl mit einer Gesamthöhe von 4 m, 0,3 m Durchmesser (zylindrisch), einem Konuswinkel von 45° und einem lichten Durchmesser des am Konusstumpf 8 angebrachten Rohres 9 von 25 mm wurden 25 kg Katalysatorträger mit einem Schüttgewicht von 450 kg/m³ und einer Partikelgrößenverteilung gemäß Tabelle 1 behandelt. Dabei wurde der Reaktor über 6 Stunden von Umgebungstemperatur auf 600°C aufgeheizt, wobei N2 als Wirbelgas benutzt wurde. Anschließend wurde der Reaktor 10 Stunden auf dieser Temperatur gehalten und danach abgekühlt. Die auf das leere Rohr bezogene Geschwindigkeit im zylindrischen Reaktorteil betrug dabei zwischen 4 cm/s und 8 cm/s. Nach dem Ende

des Vorgangs wurde das Wirbelgas abgestellt und der Katalysatorträger abgelassen. Nach dem Entleerungsvorgang verblieben ca. 0,05 kg Katalysatorträger (d.h. ca. 0,2%) im Reaktor, der an der Wandung als Staubbelag anhaftete.

5

Tabelle 1

Materialeigenschaften des Kieselgels ES70X®

Test	
Porenvolumen	1.69 cc/g
Oberfläche	320 m²/g
flüchtige Anteile	7.0 %
Soda (als Na ₂ O)	500 ppm
Schüttdichte	300 g/l

10

Partikelgrößenverteilung des Kieselgels ES70X® (Hersteller Crosfield Catalysts) vor und nach der Kalzinierung

Material	Behandlung	Median µm	< 20,2 μm	< 32 µm	> 80,7µm
ES70X® (Silikat mit ca. 99,3% SiO ₂)	unbehandelt	40.0	1.0	18.5	0.2
	10 h ausheizen bei 600 °C und N ₂	40.5	1.1	19.1	0.1

15

20

25

(Meßmethode: Coulter Counter, Vorbehandlung: 30 sec Ultraschall, Elektrolyt: 49.5 % Wasser, 49.5 % Glycerin, 1% NaCl, Kapillare: 560 µm, Betriebsart: manuell)

Beispiel 2 (Aktivierung)

In einem Reaktor aus Stahl mit einer Gesamthöhe von 5 m, 0,6 m Durchmesser (zylindrisch), einem Konuswinkel von 45° und einem lichten Durchmesser des am Konusstumpf 8 angebrachten Rohres 9 von 51 mm wurden 200 kg Katalysator mit einem Schüttgewicht von 420 kg/m³ und einer Partikelgrößenverteilung gemäß

Tabelle 2 aktiviert. Dabei wurde der Apparat über 10 Stunden von Umgebungstemperatur auf 705°C aufgeheizt, wobei Luft als Wirbelgas benutzt wurde. Anschließend wurde der Apparat für 10 Stunden auf dieser Temperatur gehalten und danach abgekühlt. Während der Abkühlphase wurde auf Stickstoff als Wirbelgas umgestellt. Die auf das leere Rohr bezogene Geschwindigkeit im zylindrischen Reaktorteil betrug dabei 5 cm/s – 10 cm/s. Nach dem Ende des Vorgangs wurde das Wirbelgas abgestellt und der Katalysator abgelassen. Nach dem Entleerungsvorgang verblieben ca. 0,1 kg Katalysator (d.h. etwa 0,05%) im Reaktor.

10

15

20

25

Vergleichsbeispiel V2 (Aktivierung)

In einem Reaktor mit 5,5 m Gesamthöhe, einem Durchmesser von 0,6 m und einem horizontalen Gasverteilerboden mit zylindrischen Bohrungen (Lochblech), wurden 125 kg Katalysator des Typs aus Beispiel 2 aktiviert. Dabei wurde der Apparat 10 Stunden von Umgebungstemperatur auf 705°C aufgeheizt, wobei Luft als Wirbelgas benutzt wurde. Anschließend wurde der Apparat für 10 Stunden auf dieser Temperatur gehalten und danach abgekühlt. Während der Abkühlphase wurde auf Stickstoff als Wirbelgas umgestellt. Die auf das leere Rohr bezogene Geschwindigkeit im zylindrischen Reaktorteil betrug dabei 5 cm/s – 10 cm/s. Nach dem Ende des Vorgangs wurde der Katalysator über ein zentral angebrachtes Auslaßrohr abgelassen. Nach dem Entleervorgang verblieben 5,2 kg (d.h. etwa 4%) auf dem Verteilerboden.

Tabelle 2

Materialeigenschaften des Katalysators Sylopol 969 IDW®

Test	Kaufware	
Porenvolumen cc/g	1.24	1.24
Oberfläche m²/g	316	nicht bestimmt
flüchtige Anteile, %	6.1	nicht bestimmt
Na ₂ O, %	0.08	nicht bestimmt

Test	Kaufware	nach der Aktivierung
Schüttdichte, g/l	nicht bestimmt	329

Partikelgrößenverteilung des Katalysators Sylopol 969 IDW® (Hersteller Grace GmbH) vor und nach der Aktivierung.

5

Material	Behandlung	Median µm	< 20,2 μm	< 32 µm	> 80,7µm
Sylopol 969 IDW® (Silikat mit ca. 98% SiO ₂ und ca. 1% Cr)	unbehandelt	56.2	0.8	8.3	14.1
	10 h ausheizen bei 705 ℃	51.5	0.8	9.0	5.8

(Meßmethode: Coulter Counter, Vorbehandlung: 30 sec Ultraschall, Elektrolyt: 49.5 % Wasser, 49.5 % Glycerin, 1% NaCl, Kapillare: 560 µm, Betriebsart: manuell)

25

Patentansprüche

- 1. Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch
- a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors,
 - b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor,
 - c) Behandlung der Katalysator- oder der Katalysatorträger-Partikeln in der Wirbelschicht und
- d) Entladung des Reaktors,

wobei ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden (2) eingesetzt wird.

- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zur
 Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln ein oder mehrere Abscheideorgane eingesetzt werden.
 - 3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheideorgan(e) ein oder mehrere Zyklone (4) verwendet werden.
 - 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Entladung des Reaktors (Stufe d) rückstandsfrei oder nahezu rückstandsfrei erfolgt.
- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Behandlung des Katalysators oder des Katalysatorträgers (Stufe c) eine Aktivierung und/oder eine Kalzinierung ist.

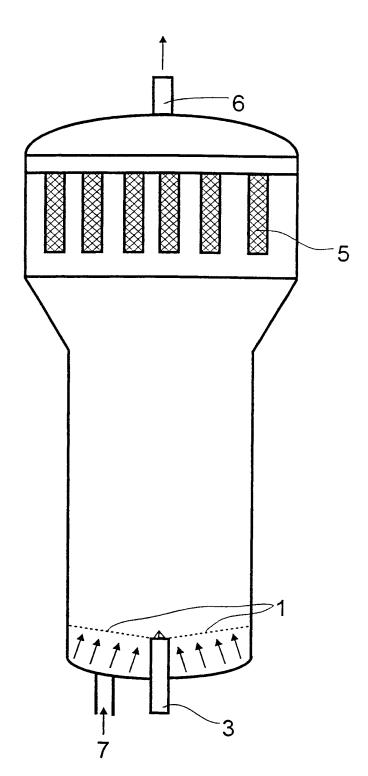
- 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß auch Flüssigkeiten und/oder zusätzliche Feststoffe und/oder zusätzliche Gase in die Wirbelschicht eingebracht werden.
- 5 7. Verwendung der in dem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6 behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträger zur Herstellung von Polyolefinen.
- 8. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 2 bis 6, enthaltend folgende Einrichtungen:
 - i) einen Reaktormantel mit einem sich nach unten verjüngenden, bevorzugt konisch ausgebildeten Reaktorboden (2),
 - ii) ein unterhalb des Reaktorbodens (2) befindliches Rohr (9) zur Gaseinleitung in den Reaktor, das mit einem Gaseinlaßrohr für den Gaseingang (7) verbunden ist,
 - iii) eine unterhalb des Reaktorbodens befindliche Vorrichtung zur Entladung des Reaktors (3) und
 - iv) ein Abscheideorgan.

15

- 9. Reaktor nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß der sich nach unten verjüngende Reaktorboden (2) konisch ausgebildet ist.
- Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß der konisch ausgebildete Reaktorboden (2) einen zwischen den beiden inneren Mantelflächen gemessenen Konuswinkel α von 10° 120°, bevorzugt von 30° 80° aufweist.
- 11. Reaktor nach einem der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß der
 30 Winkel β, der zwischen dem Gaseinlaßrohr des Gaseingangs (7) und der
 Vertikalen nach oben gemessen wird, 20° 70°, bevorzugt 30° 60° beträgt.

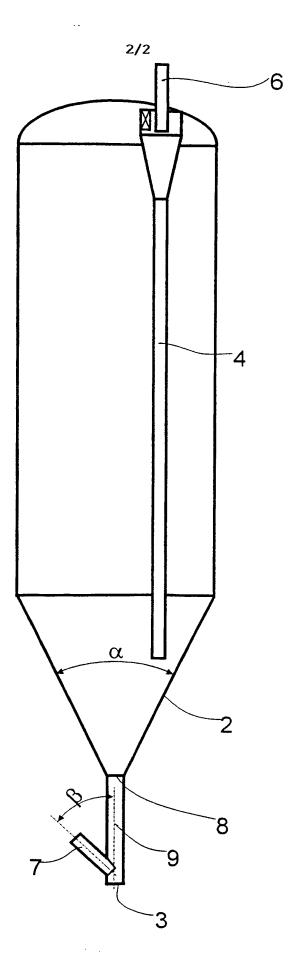
- 12. Reaktor nach einem der Ansprüche 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheidorgan ein Zyklon eingesetzt wird.
- 13. Polyolefine hergestellt mittels Katalysatoren oder Katalysatorträgern gemäß
 dem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6.

FIG.1



		•
		•
		•,
		,

FIG.2



		• •
		≱.